

Beszámoló

a 76101 sz. OTKA projekt kutatási eredményeiről

A munkaterv célkitűzései

1. Felépíteni az első magyarországi THz-es laboratóriumot.
2. Tovább növelni a THz-es impulzusok energiáját.
3. Nemlineáris THz-es spektroszkópia különböző mintákon. Ferroelektromos kristályok rácspotenciál anharmonikusságának kísérleti meghatározása. Megvizsgálni mi okozza az átalakítási hatásfok nagy pumpáló energiáknál megfigyelt csökkenését.
4. Közeltér THz-es optikai kísérletek tervezése, előkísérletek végzése.
5. Különböző bakterio-rodopszin mutánsok által kibocsátott THz-es sugárzás időbeli lefutásának pontos meghatározása.

Eltérés az eredeti célkitűzésektől

A munkaterv arra épült, hogy a kutatási időszak elején sikerül létrehoznunk Magyarországon első terahertzes laboratóriumát, de ez csak a kutatási időszak végére sikerült. Emiatt az erre épülő kísérleteket nem tudtuk elvégezni. A csúszást nagy részben a beszerzések elhúzódnása okozta. A tervezéskor egy saját építésű pumpáló lézerrendszerben gondolkodtunk. A kutatás megkezdésére azonban a PTE elnyert egy nagy összegű infrastruktúrafejlesztő pályázatot. Ebből rendelkezésünkre állt elegendő összeg egy kereskedelmi forgalomban kapható megfelelő pumpáló lézer (Pharos) beszerzésére. Megkezdtuk ezt a beszerzést, és kutatói idő- és költségtakarékosság miatt kevésbé intenzíven folytattuk a saját építésű lézer megvalósítását. A Pharos közbeszerzési eljárása viszont sajnos másfél évet késett.

Jelentős eltérés volt pozitív irányban is. Egyrészt a tervezettnél is nagyobb energiájú (világrekord) THz-es impulzusokat sikerült előállítanunk. Másrészt, az extrém nagyenergiájú THz-es impulzusok eddig nem ismert alkalmazási lehetőségeit vizsgáltuk modell-számításokkal. A következőkben bemutatjuk az eredeti munkaterv megvalósult két első célkitűzésével kapcsolatos eredményeinket, majd (a 3. és 4. pontban) az extrém nagyenergiájú THz-es impulzusok eddig nem ismert/vizsgált két alkalmazási lehetőségére vonatkozó eredményeket mutatjuk be.

1. Az első magyarországi THz-es laboratórium felépítése

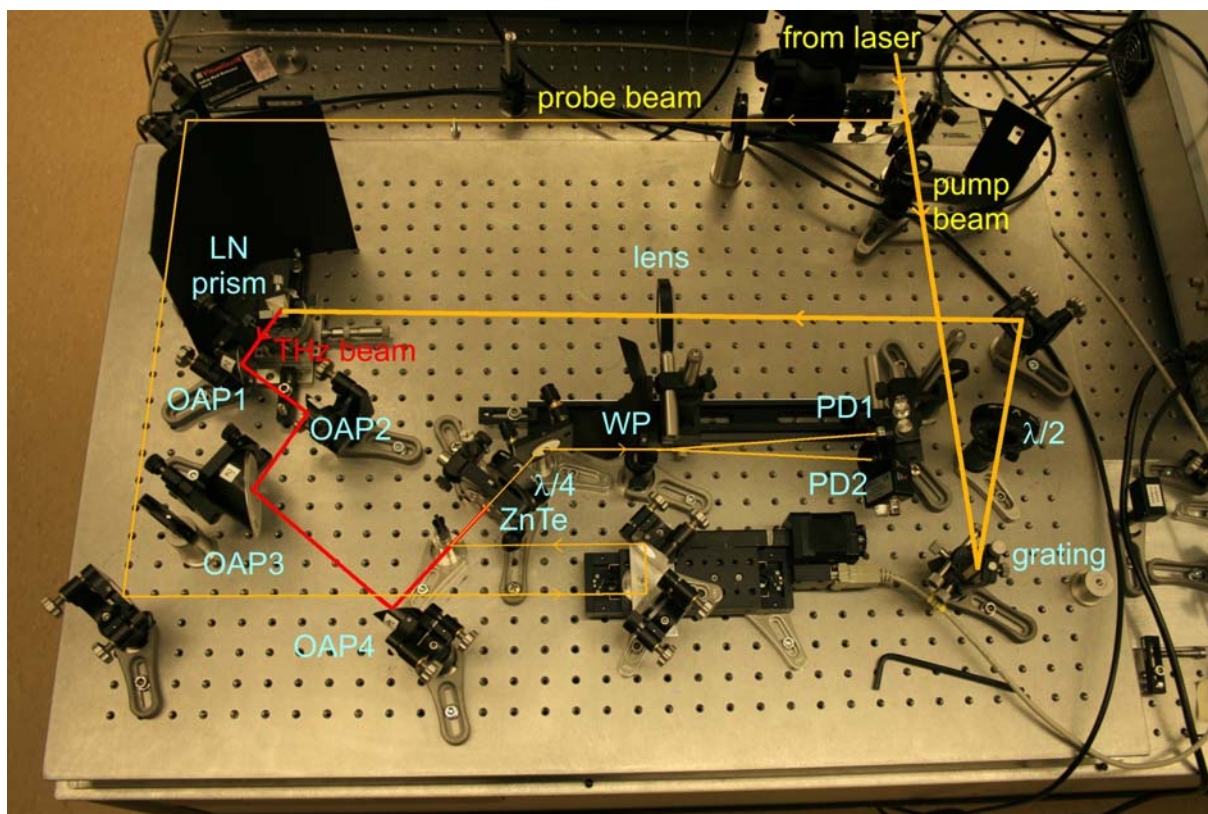
A pályázat keretében elsődleges célunk volt egy olyan THz-es laboratórium kiépítése, ahol világszínvonalú kutatások végezhetők. Általában a THz-es tudományterület, de kifejezetten a nagyintenzitású ultragyors THz-es források utóbbi néhány évben tapasztalható gyors fejlődése miatt ez μJ nagyságrendű THz energiát követel. Ehhez szükséges, hogy a laboratóriumban rendelkezésre álljon megfelelő femtoszekundumos pumpáló lézer, legalább 1 mJ impulzusenergiával. Diagnosztikai oldalról a fő követelmény egy időtartománybeli THz-es mintavételező berendezés, amely a THz-es impulzusok időfüggő elektromos térerősségének közvetlen mérését teszi lehetővé.

Beruházási szempontból a pumpáló lézer a legjelentősebb tétel (50 – 100 millió Ft). A pályázat futamideje alatt lehetőségünk nyílt más forrásból egy kommersziális pumpáló lézer beszerzésére (2011. novemberi szállítással), amelynek fő paraméterei a következők: 1 mJ impulzusenergia, 180 fs impulzushossz, 1035 nm központi hullámhossz, 1 kHz ismétlési frekvencia. Ehhez felépítettünk egy döntött impulzusfrontú gerjesztésen alapuló, LiNbO_3

kristályt használó THz forrást, amelynek komponenseit jelentős részben a pályázatból szereztük be. A forrás $0,6 \mu\text{J}$ energiájú ultrarövid THz-es impulzusokat szolgáltat, az impulzusenergiát a pályázatból beszerezett THz teljesítménymérővel mértünk. Összeállítottuk az időtartománybeli THz-es mintavételező berendezést, jelenleg ennek tesztelését és az első spektroszkópiai mérések előkészítését végezzük.

Folyamatban van egy másik (az eredetileg tervezett) pumpáló lézerforrás építése is, amely 30 – 100 mJ energiájú impulzusok előállítására lesz képes. Az $1,6 \mu\text{m}$ hullámhosszon működő femtoszekundumos optikai parametrikus erősítő rendszer teljes egészében saját fejlesztés. A parametrikus erősítő pumpáláshoz elkészült egy $1,06 \mu\text{m}$ hullámhosszon működő regeneratív erősítő; jelenleg ennek optimalizálását végezzük. Elkészült az impulzusnyújtó, a kompresszor összeállításán dolgozunk. A pumpáló és az erősítendő impulzusok szinkronizálása megoldott. A regeneratív erősítő optimalizálásának befejezése után a közeljövőben az első parametrikus erősítőfokozat megépítése következhet. A femtoszekundumos impulzusok időbeli jellemzésére másodrendű autokorrelátort építettünk.

Összefoglalva, felépítettük az első magyarországi THz-es laboratóriumot, benne egy nagyintenzitású THz forrással és egy elektro-optikai mintavételező berendezéssel. Laboratóriumunk a közeljövőben külső felhasználók számára is hozzáférhető lesz, ahol spektroszkópiai mérések széles skáláját lehet majd elvégezni, beleértve THz pumpa – THz próba méréseket is.



1. ábra. Laboratóriumunk THz forrása és az elektro-optikai mintavételező berendezés.

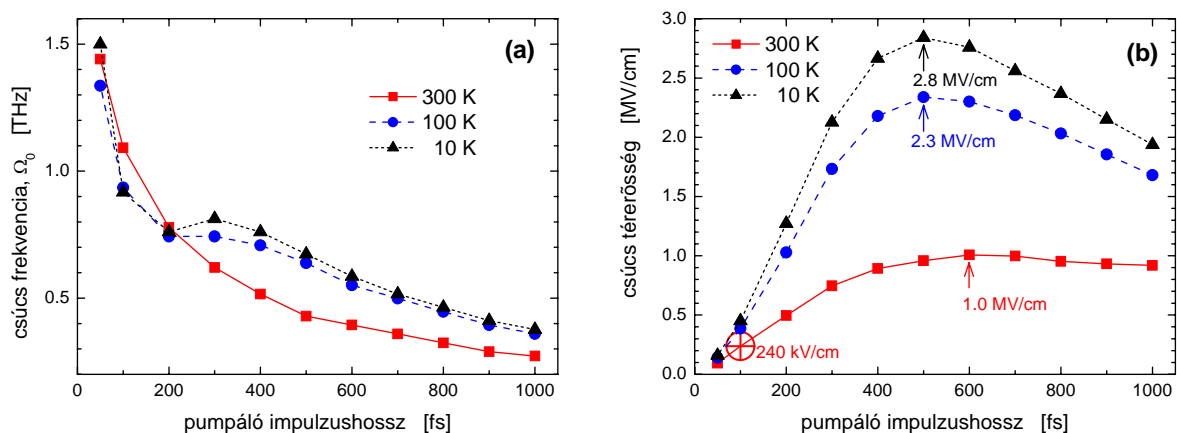
2. A THz-es impulzusok energiájának további növelése

Ultrarövid lézerimpulzusok optikai egyenirányítása [1] egyszerű és hatékony módszer nagyenergiájú THz-es impulzusok előállítására. Hasonlóan más nemlineáris optikai folyamatokhoz, optikai egyenirányításnál is kell fázisillesztési feltételnek teljesülnie. Ez a pumpáló impulzus csoportsebességének és a THz-es sugárzás fázissebességének egyenlőségét írja elő. A legtöbb kísérletben használt Ti:zafír lézerek 800 nm-es hullámhosszán ez a feltétel ZnTe-ban teljesül [2]. ZnTe-ot használva az eddig elért legnagyobb THz energia 1,5 μJ volt [3]. Itt azonban a pumpa kétfotonos abszorpciója révén szabad töltéshordozók keletkeznek, amelyek a THz tartományban jelentős abszorpciót okoznak, ezzel limitálják a hasznos pumpáló intenzitást és az elérhető hatásfokot [3,4]. A LiNbO₃ (LN) jóval nagyobb nemlineáris együtthatóval rendelkezik mint a ZnTe. Ráadásul a nagyobb tiltott sáv szélessége miatt a többfotonos abszorpció korlátozó hatása csak sokkal nagyobb intenzitásoknál lép fel. Ezért ez az anyag alkalmasabb optikai egyenirányításra. LN-ban azonban nem lehetséges kollineáris fázisillesztés, mert az optikai csoportsebesség több mint kétszerese a THz fázissebességnek [5]. A döntött impulzusfrontú gerjesztést mi javasoltuk 2002-ben LN-ban sebességillesztés létrehozására THz keltéshez [6]. Ez a technika a 2007 évi közleményünk megjelenése [7] után kezdett elterjedni, és felhasználásával mások az utóbbi időben 50 μJ -os THz impulzusokat állítottak elő [8].

A LN-ban való THz keltés paramétereinek optimalizálása

A jelenleg elérhetőnél nagyobb THz energia és térerősség számos új alkalmazás szempontjából fontos. Ennek a célnak az eléréséhez a numerikus számolások segítségével megvizsgáltuk LN esetében a kimenő THz térerősség függését a pumpáló impulzushossztól és a LN kristály hőmérsékletétől. A számolások alapjául szolgáló modell leírása megtalálható a [9,10] munkákban.

A 2(a) ábrán a számított THz spektrális intenzitás-eloszlás csúcsához tartozó THz frekvencia látható a transzformáció-limitált pumpáló impulzushossz függvényében, a LN kristály hőmérsékletének három különböző értékére. Mivel az egyes THz spektrális komponensek a pumpálás két-két spektrális komponensének frekvenciakülönbségeiként állnak elő, az elérhető THz frekvenciákat meghatározza a pumpálás spektrális szélessége. Így a növekvő pumpáló impulzushosszal csökkenő sáv szélessége a csúcs THz frekvencia csökkenésével jár.

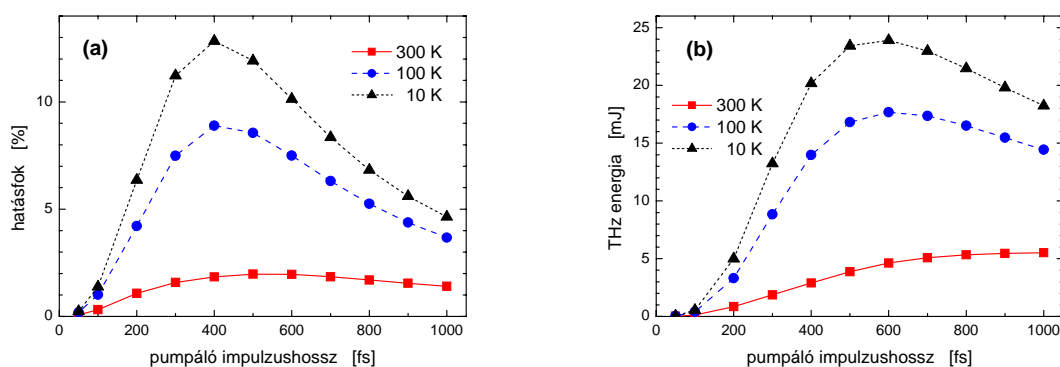


2. ábra. THz spektrális intenzitás-eloszlás csúcsához tartozó THz frekvencia (a) és a THz-es impulzusok elektromos térerősségének maximuma a LN kristály kimenetén (b) a transzformáció-limitált pumpáló impulzushossz függvényében különböző hőmérsékletekre ([9] alapján).

A kimenő THz térerősség-spektrum Fourier-transzformációjával kapott időbeli impulzusalakok csúcs-térerősségeit mutatja a 2(b) ábra a transzformáció-limitált pumpáló impulzushossz függvényében különböző hőmérsékletekre. Az ábrán kereszttel jelölt 100 fs és 300 K értékekhez közeli paramétereket alkalmaztak számos eddigi kísérletben, ahol Ti:zafír lézereket használtak pumpáló forrásként [11–13]. Ilyen kísérleti feltételekre a számításaink 240 kV/cm csúcserősséget adnak az elektromos térerősségre, ami jól közelíti a kísérleti értéket. Látható, hogy a pumpáló impulzushossz értékének növelése jelentősen növeli az elérhető térerősség-maximumot. A szokásos 100 fs helyett 600 fs-os impulzusokkal pumpálva a kimenő THz csúcs-térerősség több mint négyszeresre, az extrém nagy 1,0 MV/cm értékre növelhető. Megjegyezzük, hogy ezzel párhuzamosan a THz spektrum intenzitás-csúcsához tartozó frekvencia 1,1 THz-ről 0,4 THz-re csökken (2(a) ábra). A THz térerősség növekedése részben az alacsonyabb frekvencia miatti kisebb THz abszorpció, részben pedig a hosszabb pumpáló impulzushosszból adódó hosszabb effektív THz keltési hossz következménye [9]. (Az effektív hossz definíciója, és e hossz impulzushossztól való függésének magyarázata megtalálható a [9] cikkünkben.) A kristály alacsony hőmérsékletre hűtésével a THz abszorpció jelentősen tovább csökkenthető. Így pl. 500 fs-os pumpálás esetén 10 K hőmérsékleten a térerősség csúcserőssége 2,8 MV/cm, ami több mint egy nagyságrenddel nagyobb a 100 fs, 300 K-hez tartozó értéknél (2(b) ábra).

Extrém nagy energiák és térerősségek nagy felületű forrásokból

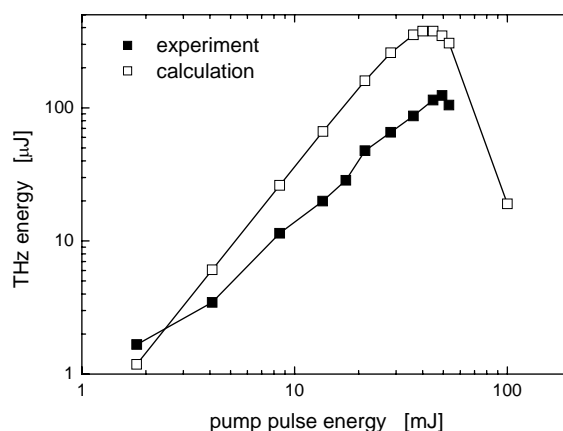
A THz keltés hatásfokának függését a pumpáló impulzushossztól a 3(a) ábrán láthatjuk. 100 fs és 300 K esetén a hatásfok 0,31%, ami 2%-ra nő 500 fs-os pumpálást használva. A kristályt 10 K-re hűtve és az optimális 400 fs-os impulzushosszat használva a hatásfok 13%. Az általunk javasolt kontaktrácsos elrendezés [14] a leképező optika kiküszöbölésével lehetővé teszi az eddigieknél lényegesen nagyobb felület pumpálását, ezzel jelentősen megnövelve az elérhető THz energiát. A 3(b) ábra az elérhető THz energiát mutatja a pumpáló impulzushossz függvényében, különböző hőmérsékletekre. A pumpált felület átmérője 5 cm volt. 200 mJ energiájú, 500 fs-os pumpáló impulzusokat használva a kimenő THz energia 23 mJ 10 K hőmérsékleten, 1 cm-es kristályhossz esetén. Ilyen extrém nagy energiájú THz-es impulzusok fókuszálásával az elektromos térerősség csúcserőssége elérheti a 100 MV/cm értéket, ami két nagyságrenddel nagyobb, mint az 1 THz körüli frekvenciatartományban jelenleg elérhető.



3. ábra. A THz keltés hatásfoka (a) és az 5 cm átmérőjű pumpált felület esetében elérhető THz energia (b) a pumpáló impulzushossz függvényében különböző hőmérsékletekre ([9] alapján).

Kísérleti eredmények

Az optimális (~500 fs-os) hosszúságú pumpáló impulzusok esetére az eddigieknél jelentősen nagyobb hatásfokot jelző számításaink ellenőrzésére elvégeztünk egy kísérletet a garchingi Kvantumoptikai Max Planck Intézet 1030 nm hullámhosszú, 1,3 ps impulzushosszúságú (Fourier-limit: 600 fs) lézerével, szobahőmérsékletű LN kristályt használva [15]. Noha a pumpáló impulzusok az optimálisnál hosszabbak voltak, a kísérlet meggyőzően bizonyította a korábbiaknál hosszabb impulzushossz előnyét. A 4. ábrán látható a mért THz energia a pumpáló energia függvényében. 50 mJ pumpáló energiával sikerült 125 μ J energiájú THz-es impulzusokat előállítani. Ez a THz energia 2,5-szer nagyobb, mint az eddig publikált legnagyobb THz energia, ami 50 μ J volt, 100 fs-os pumpálást használva [8]. Az általunk elért 0,25% hatásfok ötször nagyobb, mint a [8] hivatkozásban leírt érték. A THz energia csökkenése a legnagyobb pumpáló energia esetében (4. ábra) a LN-ban fellépő négyfotonos abszorpciónak tulajdonítható.



4. ábra. Mért és számított THz energia a pumpáló energia függvényében.

Összefoglalás

Optimális tervezési paramétereket adtunk meg a leképezést használó döntött impulzusfrontú THz gerjesztő elrendezésre [9]. Kimutattuk, hogy a szokásos 800 nm-nél hosszabb pumpáló hullámhosszak, valamint döntött impulzusfrontot használva félvezető anyagok (pl. ZnTe, GaP) alkalmasak a LiNbO₃-hoz hasonló, vagy azt meghaladó THz keltési hatásfok elérésére [9]. Numerikus számítások segítségével megmutattuk, hogy optikai egyenirányítással LN-ban döntött impulzusfrontú gerjesztést használva az elérhető THz energia és térerősség jelentősen (egy, ill. két nagyságrenddel) növelhető, egészen a 10 mJ, 100 MV/cm szintig [10]. A THz-keltés hatásfokának növekedése három fő tényezőnek köszönhető: (i) optimális, ~500 fs-os pumpáló impulzushossz használata; (ii) THz abszorpció csökkentése a LN kristály hűtésével; (iii) nagy pumpáló energia és pumpált felület használata, amit főleg a kontaktrácsos impulzusfront-döntő elrendezés tesz lehetővé [14]. Kísérletünkben előállítottuk az eddigi legnagyobb, 125 μ J energiájú THz-es impulzusokat, az eddigi legnagyobb, 0,25%-os hatásfokkal [15].

3. THz-es impulzussal segített attoszekundumos impulzus előállítás

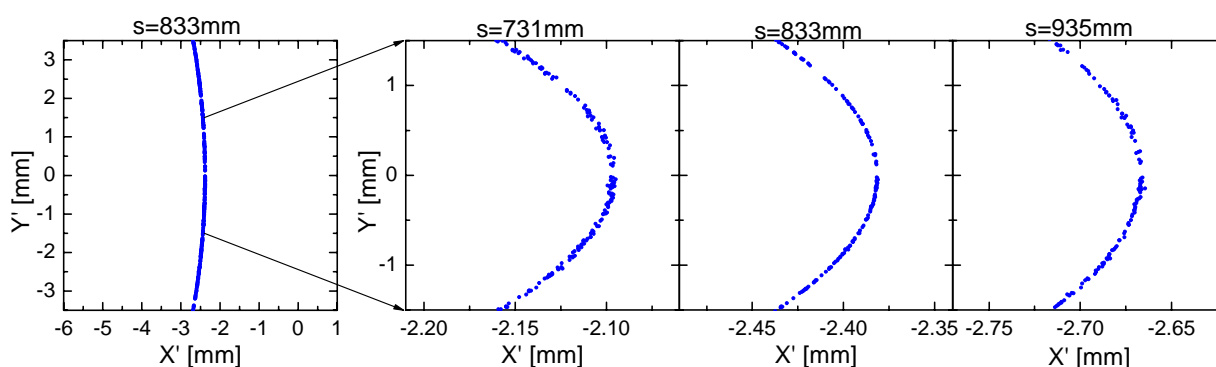
Az ilyen extrém nagy, több 10 MV/cm térerősséggel rendelkező THz-es impulzusok számos új alkalmazási lehetőséget kínálnak. Például, ha a közeli infravörös (IR) pumpáló lézerimpulzus mellett nagy csúcs-térerősséggel rendelkező THz-es impulzust is alkalmazunk attoszekundumos (as) impulzusok gáz-jetben létrehozott magas harmonikuskeléssel történő előállításakor, akkor a THz-es impulzus az IR impulzus időtartama alatt eltolja a térerősséget és ezzel megbontja az IR impulzus szimmetriáját. Emiatt egy IR periódusonként nem

keletkezik a pozitív és negatív térerősség csúcsához köthető két as impulzus, hanem csak egy. (A magas harmonikus spektrum páros és páratlan felharmonikust is fog tartalmazni.) További fontos következmény, hogy a levágási frekvencia jelentős mértékben, 100 MV/cm THz-es tér esetén akár 100 %-al is megnőhet [16]. A magas harmonikus spektrum megfelelő részének kivágásával többciklusú (12 – 15 fs időtartamú) IR impulzusokkal is lehet egyes as impulzust keltetni a THz-es impulzus segítségével [16].

C. Serrat és J. Biegert modellszámításai szerint [17] gáz-jetben történő magas-harmonikus keltés esetén a gerjesztett térfogat intenzív CO₂ lézerrel történő keresztirányú, térben periodikus megvilágításával kvázi-fázisillesztés érhető el. Észrevettük, hogy a javasolt eljárás technikai okokból valójában nem megvalósítható. Ezzel szemben CO₂ lézer helyett megfelelő frekvenciájú THz-es impulzusokat használva technikailag kivitelezhető kvázi-fázisillesztő elrendezést lehet megvalósítani. Szegedi és kolozsvári együttműködő partnereink 3D nem-adiabatikus modellszámításai szerint már 5MV/cm THz-es térerősség is elég ahhoz, hogy a levágási frekvencia közelében a harmonikusok intenzitása százszorosra növekedjen [18]. További háromszoros növekedés érhető el akkor, ha a THz-es impulzusok megfelelő csörppel rendelkeznek [18].

4. Töltött részecskék manipulációja extrém THz-es impulzusokkal

Az extrém nagy térerősségű THz-es impulzusok további alkalmazási lehetősége lehet relativisztikus elektronsomagok, vagy lézerplazmával keltett protoncsomagok manipulálása, például gyors eltérítése, időbeli fókuszálása, gyorsítása, monokromatizálása. Elkezdjük a lehetőségek feltárását részecske-részecske kölcsönhatás típusú numerikus módszerek segítségével.



5. ábra. Elektronsomag alakja THz-es optikai kapun történő áthaladás után a csomag nyugalmi koordináta-rendszerében. $E_{\text{THz}} = 100 \text{ MV/cm}$, $Q_{\text{cs}} = 1 \text{ fC}$, $\gamma = 50$, $\sigma_y = \sigma_z = 4 \mu\text{m}$, $\sigma_x = 8 \mu\text{m}$. A fókuszált csomag hossza a laboratóriumi rendszerben $\Delta x \approx 10 \text{ nm}$. Az optikai kaputól mért laborbeli távolságok az ábrák felett vannak feltüntetve.

Kaplan és Pokrovsky 2009-ben javasolták az optikai kaput elektronsomagok időbeli fókuszálására [19]. Optikai kapun itt két, egymással szemben haladó lefókuszált lézernyalábbal előállított állóhullámot értünk. Az elektronsomag haladjon az állóhullám azon síkjában, ahol a térerősségnek maximuma van, és használjunk olyan polarizációt, hogy az elektromos tér az elektronok haladási irányában oszcillál. Ilyen elrendezésnél az elektronsomag különböző részeire az állóhullám más és más átlagos fázisú tere fog hatni. Az elektronsomag egy részét gyorsítani, más részét viszont lassítani fogja az optikai kapu. Az elektronsomag és az optikai kaput létrehozó lézerimpulzus megfelelő relatív késleltetése esetén a csomag eleje fog lassulni, a vége pedig gyorsulni. Ilyen esetben megfelelő repülési hossz alatt az elektronsomag hosszirányban igen jelentősen összenyomódik, időben

fókuszálódik [19]. A gyakorlatban előállított elektronnyalábok legalább néhány mikrométer, de tipikusan néhány 10 mikrométer méretűek. Emiatt nem lehet -az eredeti elképzelésnek megfelelően-, 1 mikrométer hullámhosszú lézereket használni. A THz-es impulzusok több száz mikrométer hullámhossza viszont tökéletesen illeszkedik a tipikus elektroncsomag mérethez. Numerikus számolásaink szerint 100 MV/cm térerősségű THz-es impulzusokkal megvalósítható THz-es optikai kapu [20].

Az 5. ábra egy $\gamma = 50$ relativisztikus faktorral rendelkező $Q_{cs} = 1$ fC össztöltésű elektroncsomag térbeli alakját mutatja az optikai kaputól különböző távolságra. Látható, hogy az optikai kaputól 833 mm-re hosszirányban fókuszálódik a csomag. A repülés irányában a mérete nem nagyobb, mint 10 nm. (Az ábrán a csomag saját rendszerében vannak ábrázolva az elektronok. A labor rendszerben a hosszirányú méret 50-szer kisebb.) Egyciklusú, megfelelő frekvenciájú THz-es impulzusoknak az így fókuszált elektroncsomagon történő (Thomson) szórásával várhatóan elő lehet állítani egyciklusú EUV – MIR impulzusokat. Ennek (elsősorban a keletkező impulzus energiájának) a további vizsgálata szükséges. Ha megvalósítható, és gyakorlati alkalmazásokhoz megfelelő az energia, akkor ennek nagyon nagy jelentősége van (például az ELI-ALPS szempontjából is).

Az extrém nagy térerősségű THz-es impulzusok további alkalmazását jelentheti rövid periódusú undulátorként történő alkalmazása [20,21].

Irodalomjegyzék

- [1] B. B. Hu, X.-C. Zhang, D. H. Auston, Appl. Phys. Lett. **56**, 506 (1990)
- [2] T. Löffler, T. Hahn, M. Thomson, F. Jacob, H. G. Roskos, Opt. Express **15**, 5353 (2005)
- [3] F. Blanchard, L. Razzari, H.-C. Bandulet, G. Sharma, R. Morandotti, J.-C. Kieffer, T. Ozaki, M. Ried, H. F. Tiedje, H. K. Haugen, F. Hegmann, Opt. Express **15**, 13212 (2007)
- [4] M.C. Hoffmann, K.-L. Yeh, J. Hebling, K. A. Nelson, Opt. Express **15**, 11706 (2007)
- [5] J. Hebling, K.-L. Yeh, M. C. Hoffmann, B. Bartal, K. A. Nelson, J. Opt. Soc. Am. B **25**, 6 (2008)
- [6] J. Hebling, G. Almási, I. Z. Kozma, J. Kuhl, Opt. Express **10**, 1161 (2002)
- [7] K.-L. Yeh, M. C. Hoffmann, J. Hebling, K. A. Nelson, Appl. Phys. Lett. **90**, 171121 (2007)
- [8] A. G. Stepanov, S. Henin, Y. Petit, L. Bonacina, J. Kasparian, J. P. Wolf, Appl. Phys. B **101**, 11 (2010)
- [9] J. A. Fülöp, L. Pálfalvi, G. Almási, J. Hebling, Opt. Express **18**, 12311 (2010)
- [10] J. A. Fülöp, L. Pálfalvi, M. C. Hoffmann, J. Hebling, Opt. Express **19**, 15090 (2011)
- [11] A. G. Stepanov, L. Bonacina, S. V. Chekalin, J.-P. Wolf, Opt. Lett. **33**, 2497 (2008)
- [12] K.-L. Yeh, J. Hebling, M. C. Hoffmann, K. A. Nelson, Opt. Commun. **281**, 3567 (2008)
- [13] M. C. Hoffmann, J. Hebling, H. Y. Hwang, K.-L. Yeh, K. A. Nelson, Phys. Rev. B **79**, 161201 (2009)
- [14] L. Pálfalvi, J. A. Fülöp, G. Almási, J. Hebling, Appl. Phys. Lett. **92**, 171107 (2008)
- [15] J.A. Fülöp, L. Pálfalvi, S. Klingebiel, G. Almási, F. Krausz, S. Karsch, J. Hebling, Opt. Lett. **37**, 557 (2012)
- [16] E. Balogh, K. Kovacs, P. Dombi, J. A. Fülöp, Gy. Farkas, J. Hebling, V. Tosa, K. Varjú, Phys. Rev. A **84**, 023806 (2011)
- [17] C. Serrat, J. Biegert, Phys. Rev. Lett. **104**, 073901 (2010)
- [18] K. Kovács, E. Balogh, J. Hebling, V. Tosa, K. Varjú, Phys. Rev. Lett. submitted (2012)
- [19] A. E. Kaplan, A. L. Pokrovsky, Optics Express **17**, 6194 (2009)
- [20] arxiv.org/abs/1109.6852 (2011)
- [21] Rövid periódusú undulátor – Magyar szabadalmi bejelentés: P1100452 (2011)